

19 BUNDESREPUBLIK **DEUTSCHLAND**

Übersetzung der europäischen Patentschrift

(5) Int. Cl.6: H 01 M 8/24

H 01 M 8/02



DEUTSCHES PATENTAMT DE 690 14 155 T 2

Deutsches Aktenzeichen:

690 14 155.6

Europäisches Aktenzeichen:

90 107 914.5

Europäischer Anmeldetag:

26. 4.90

Erstveröffentlichung durch das EPA:

2. 1.91

Veröffentlichungstag

@ EP 0 405 088 B1

17. 11. 94

der Patenterteilung beim EPA: Veröffentlichungstag im Patentblatt: 18. 5.95

30 Unionspriorität: 32 33 31

03.05.89 US 346666

10.04.90 US 505293

(73) Patentinhaber:

Institute of Gas Technology, Chicago, III., US

(74) Vertreter:

Jeck, A., Dipl.-Ing.; Fleck, H., Dipl.-Ing. Dr.-Ing., Pat.-Anwälte, 71701 Schwieberdingen

(84) Benannte Vertragstaaten:

DE, DK, ES, FR, GB, IT, NL, SE

② Erfinder:

Marianowski, Leonard G., Mount Prospect Illinois 60056, US; Petri, Randy J., Highland Indiana 46322, US; Lawson, Mark G., Berwyn Illinois 60402, US

(4) Brennstoffzellenstapel mit vollständig in Innern angeordneten Sammelkanälen.

Anmerkung: Innerhalb von neun Monaten nach der Bekanntmachung des Hinweises auf die Erteilung des europäischen Patents kann jedermann beim Europäischen Patentamt gegen das erteilte europäische Patent Einspruch einlegen. Der Einspruch ist schriftlich einzureichen und zu begründen. Er gilt erst als eingelegt, wenn die Einspruchsgebühr entrichtet worden ist (Art. 99 (1) Europäisches Patentübereinkommen).

Die Übersetzung ist gemäß Artikel II § 3 Abs. 1 IntPatÜG 1991 vom Patentinhaber eingereicht worden. Sie wurde vom Deutschen Patentamt inhaltlich nicht geprüft.

Brennstoffzellenstapel mit vollständig im Innern angeordneten Sammelkanälen

Die Erfindung bezieht sich auf einen Brennstoffzellenstapel mit vollständig im Innern angeordneten Sammelkanälen und insbesondere auf ein Verfahren und eine Methode zum Abdichten der Kanäle mit nassen Dichtungen zwischen dem Elektrolyt und den metallischen Separatorplatten, was eine lange Lebensdauer und Stabilität gewährleistet.

Im allgemeinen bestehen Brennstoffzellenstapel Stapel von Einzelzellen, die durch inerte oder durch bipolar elektrisch leitende eisenhaltige Separatorplatten voneinander getrennt sind. Die einzelnen Zellen sind aufeinander gestapelt einem Stapel vereinigt, um die gewünschte Brennstoffzellenenergie erzielen zu können. Jede einzelne Zelle umfasst im allgemeinen eine Anode, eine Kathode und eine gemeinsame Elektrolytkachel sowie eine Brennstoffund Sauerstoffquelle. Sowohl der Brennstoffals der Sauerstoff wird der Zelle durch Kanäle in die jeweilige wirksame Kammer zwischen der Separatorplatte Elektrolytkachel zugeführt. Das Berührungsgebiet zwischen dem

Elektrolyt und den anderen Teilen der Zelle, welches dazu dient, Brennstoff und Sauerstoff voneinander getrennt zu halten und Gasverluste zu verhindern oder so gering wie möglich zu halten, wird als nasse Dichtung bezeichnet. Ein wesentlicher Faktor für das Versagen einer Brennstoffzelle besteht darin, dass die nasse Dichtung korrodiert oder undicht wird. Ein solches Versagen der Dichtung wird beschleunigt durch die korrosive Berührung mit dem Elektrolyt bei hoher Temperatur und hohen thermischen Belastungen infolge grosser Temperaturunterschiede beim Betrieb der Zelle, welche die Struktur infolge interkristalliner und transkristalliner Risse angreifen. Bei einem derartigen Versagen entsteht ungewünschtes Vermischen von Brennstoff- und Sauerstoffgas die Oxidations-Leckage, wodurch gewünschten Reduktionsreaktionen unterbrochen werden, was gegebenenfalls zu einem Nachlassen der Reaktionen oder zu einem Zusammenbruch der Stromerzeugung führt. Beim Betrieb der Brennstoffzelle mit Temperaturen von 500 ° bis 700 °C ist das geschmolzene Karbonat des Elektrolyts sehr korrosiv für eisenhaltige Metalle, welche wegen ihrer Festigkeit für die Zellengehäuse und Separatorplatten Anwendung finden. Die hohe Betriebstemperaturen des Brennstoffzellenstapels mit geschmolzenem Karbonat erhöhen die Korrosionsgefahr und vergrössern die Probleme der thermischen Festigkeit im Bereich der nassen Dichtungen, insbesondere dann, wenn die thermischen Dehnungskoeffizienten der benachbarten Materialien verschieden sind.

Die Erfindung schafft vollständig im Innern der Zelle angeordnete Kanäle für Brennstoff und Sauerstoff in einem Brennstoffzellenstepel, wobei nasse Elektrolyt/Metall-Dichtungen verwendet werden. Diese Anordnung der Zellen gewährleistet eine lange Lebensdauer und Haltbarkeit der Brennstoffzellen.

Stand der Technik

Es sind brauchbare Brennstoffzellenstapel bekannt, die mit geschmolzenem Karbonat arbeiten und bis zu 600 einzelne Zellen mit je 0,77 Quadratmeter Oberfläche aufweisen. Beim Stapeln derartiger Zellen werden Separatorplatten eingelegt, welche die Zufuhr von Brennstoff und Sauerstoff für jede einzelne Zelle trennen. Der Brennstoff wird zwischen einer Seite einer Separatorplatte und der Anodenseite einer Elektrolytmatrix und Sauerstoff wird zwischen der anderen Seite der Separatorplatte und der Kathodenseite einer zweiten Elektrolytmatrix eingeleitet.

Die Hauptschwierigkeit bei der Entwicklung stellen die aussen Brennstoffzellenstapel anzubringenden Kanäle getrennte Zufuhr von Brennstoff und Sauerstoff den Sowohl die Einlassdie einzelnen Zellen dar. wie Auslasskanäle jeder einzelnen Zelle müssen aussen an elektrischen Zellenstapel angeklemmt werden. Um einen

Kurzschluss zu vermeiden, muss Isoliermaterial zwischen den metallischen Kanälen und dem Zellenstapel angebracht werden. Diese aussen angebrachten Kanäle ergeben schwierige Probleme mit den Dichtungen der Kanäle untereinander und auch bei den Anschlüssen an den Zellenstapel, wobei auch noch dafür gesorgt werden muss, dass kein Karbonat in die Dichtungen gelangt. Es verschiedene Kombinationen für die Isolation sind metallischen Kanäle vom Zellenstapel ausprobiert worden, wobei aber die Schwierigkeit einer gleitenden, gasdichten, zugleich die ausserdem isolierenden Abdichtung, für elektrisch qeschmolzenes Karbonat mit hoher Temperatur undurchlässig ist, nicht befriedigend gelöst werden konnte. Das Problem der Abdichtung der Kanäle wird immer schwieriger, je mehr Zellen der Stapel enthält und je grösser die Flächen der Zellen sind. Je grösser die Anzahl der Zellen ist, umso grösser wird die Potentialdifferenz, welche das Karbonat zu den Dichtungen treibt und wenn die Fläche der Zelle zunimmt, vergrössern sich die Masstoleranzen auf der Seite der einzelnen Komponenten, so dass es sehr schwierig ist, eine zusammenhängende Oberfläche für eine Dichtung zum Anschluss der Kanäle an den Stapel zu schaffen.

Ein Zellenstapel mit 600 Zellen kann bis zu 3 Meter lang sein und bietet grosse Schwierigkeiten beim Anbringen der aussen verlaufenden Kanäle beim Anklemmen an den Stapel wegen ihrer Steifheit. Infolge der unterschiedlichen Dehnungskoeffizienten der Materialien, aus denen die Zellen aufgebaut sind,

entstehen im Betrieb unterschiedliche Dehnungen und infolge der Materialfestigkeit der Anschlusskanäle sind enge Toleranzen kaum einzuhalten, was grosse Probleme schafft.

Bei bekannten Stapeln aus Brennstoffzellen mit geschmolzenem Karbonat hat man Abstandshalter am Rand der Separatorplatten angebracht, um daran die Einlass- und Auslasskanäle mittels nassen Dichtungen anzuschliessen. Verschiedene Arten von nassen Dichtungen im Bereich der HochtemperaturBrennstoffzelle sind in der US-Patentschrift 4,579,788 beschrieben, wobei die Sintermetallverfahren verwendet Abstandshalter nach dem werden. Die US-Patentschrift 3,723,186 schlägt vor, Randbereich aus nicht im an der Reaktion Elektrolyt teilnehmendem inertem Material herzustellen, um daran eine Dichtung zwischen diesem inerten Material des Elektrolyten und dem Gehäuse anschliessen zu können. Die US-Patentschrift 4,160,067 lehrt, wie inertes Material auf das Brennzellengehäuse angebracht oder wie deren Separatorplatte im Bereich der nassen Dichtungen damit imprägniert werden kann. Die US-Patentschrift 3,867,206 beschreibt, wie eine nasse Dichtung zwischen einer mit einem Elektrolyt getränkten Matrix und dem Aussenende der mit Elektrolyt gesättigten Elektrode angebracht werden kann.

Die US-Patentschrift 4,761,348 schlägt vor, Umfangschienen aus gasdichtem Material anzubringen, um damit eine Trennung von Anode und Kathode vom Brennstoff, beziehungsweise vom

Sauerstoff zu schaffen. Die US-Patentschrift 4,329,403 schlägt vor, eine langsam ansteigene Elektrolytmasse anzubringen, um damit die Wärmedehnung der Elektroden mehr ins Innere zu verlegen, und die US-Patentschrift 3,514,333 lehrt, das Alkalimetallkarbonat-Elektrolyt in einer Hochtemperatur-Brennstoffzelle unter Anwendung einer dünnen Aluminiumdichtung anzubringen. Kein einziges der oben genannten Patente bezieht sich auf eine Dichtung von im Innern des Zellenstapels angeordneten Kanälen für die Zufuhr von Brennstoff und Sauerstoff.

Die US-Patentschrift 4,781,727 gibt an, wie man bei einer Phosphorsäure-Brennstoffzelle, die mit einer Temperatur von 150° bis 200°C arbeitet, eine Gasdichtung durch Füllen der Poren der äusseren Silikonkarbid- und Silikonnitrid-Bestandteile der Zelle erreichen kann.

Die US-Patentschriften 4,786,568 und 4,824,739 geben eine Imprägnierung der Zwischenräume in den Ecken der Substratplatten an.

Lösungen für die Abdichtung und das Korrosionsproblem bei elektrolytischen Niedertemperaturzellen durch Beschichten eines granularen inerten Materials mit Polytetrafluorethylen sind angegeben in der US-Patentschrift 4,259,389. Das US-Patent 3,012,086 schlägt Dichtungen aus Polyethylen vor und US-Patent 3,589,941 schlägt vor, O-Ring-Dichtungen für eine

innere Kanalabdichtung zu verwenden, was allerdings für Hochtemperatur-Brennstoffzellen mit geschmolzenem Karbonat unbrauchbar ist.

Die US-Patentschrift 4,510,213 schlägt vor, Uebergangsrahmen zu verwenden, welche die aktiven Teile der Zelleneinheiten umgeben, um damit Kanäle für Brennstoff und Sauerstoff für die einzelnen Zellen zu schaffen, wobei aber diese Kanäle weder die Separatorplatten, noch die Elektrolytkacheln durchsetzen. Die Uebergangsrahmen bedingen eine komplizierte Isolierung zwischen den einzelnen Zellen. eine Vielzahl was von komplizierten Teilen erfordert. Die US-Patentschrift 4,708,916 zeigt im Innern geführte Kanäle für den Brennstoff und aussen angebrachte Kanäle für den Sauerstoff für Brennstoffzellen mit geschmolzenem Karbonat, wobei die Brennstoffkanäle sowohl durch die Elektroden, als durch das Elektrolyt und durch die Separatoren zentral, an einander gegenüberliegenden Enden der einzelnen Zellen geführt sind, um kurze Strecken für die Brennstoffströmung zu erzielen. Die äussern Brennstoffkanäle weisen verdickte Enden bei den Separatorplatten auf, während die zentral verlaufenden Brennstoffkanäle einen verdickten mittleren Teil durchsetzen mit einem Dichtungsband, das mit Karbonat getränkt ist oder mit separaten zylindrischen Einsätzen versehen sind, welche die Kathode durchsetzen.

Man hat versucht, im Innern Kanäle anzubringen, wobei deren Oeffnungen an entgegengesetzten Ecken der Zelle angebracht

waren, um entweder eine gleichgerichtete Strömung oder eine Gegenströmung von Brennstoff- und Sauerstoffgas zu erreichen. Kanalöffnungen in waren verbreiterten Dichtungsbereichen in entgegengesetzen Ecken angebracht, die Kanäle aber komplizierte Gebilde waren ausserhalb Elektrolyts oder durchsetzten mindestens eine der Elektroden. Die Kanalöffnungen für den Brennstoff und für Sauerstoff lagen aber nahe beieinander, so dass die nasse Dichtstrecke nur klein war und eine Leckage der Gase verursachte, während eine Verbreiterung der Dichtstrecke die aktive Fläche der Zelle verringert hätte. Aehnliche Versuche mit im Innern geführten Kanälen mit mehreren Kanalöffnungen mit verbreiterten nassdichtungen an allen vier Ecken der Zelle zur Erzeugung einer Gegenströmung führten auch wieder zu Leckage zwischen den benachbarten Kanälen für Brennstoff und Sauerstoff, wobei der Aufbau ebenso kompliziert war und ausserdem die wirksame Fläche der Zelle verkleinerte.

Die Erfindung

Die Erfindung schafft einen Brennstoffzellenstapel mit vollständig im Innern für geführten Kanälen einen Hochtemperatur-Brennstoffzellenstapel mit qeschmolzenem Karbonat. Die Zellen mit im Innern geführten Kanälen nach der vorliegenden Erfindung sind für alle Zellen, die aus flachen Bestandteilen aufgebaut sind, brauchbar, insbesondere auch für

Hochtemperatur-Brennstoffzellen wie solche mit Feststoff-Oxyden. Bei einem Stapel aus rechteckigen Brennstoffzellen umfasst jede Zelle eine Anode und eine Kathode sowie ein Elektrolyt, das auf einer Seite mit der Anode und auf der anderen Seite mit der Kathode in Berührung steht, wobei eine Separatorplatte die einzelnen Zellen voneinander trennt und zwischen der Anode einer Zelle und der Kathode der benachbarten Zelle verläuft. Auf diese Weise schafft die Separatorplatte an einer Seite zwischen sich und der Anode eine Anodenkammer und an der anderen Seite zwischen sich und der Kathode eine Kathodenkammer. Die einzelnen Zellen sind aufeinander gestapelt, wobei die Endplatten gleich geformt sind wie die Separatorplatten und bilden halbe Zellen. Der Stapel wird zusammengepresst und bildet einen Brennstoffzellenstapel. Beim Brennstoffzellenstapel nach der Erfindung haben das Elektrolyt und die Separatorplatten dieselbe Form und erstrecken sich bis an den Brennstoffzellenstapels, während die Elektroden und die Stromsammler nicht bis zum Rand des Stapels reichen. Die Separatorplatten sind mit einem Umfangsgebilde versehen, das flächenmässig auf den Elektrolyten aufliegt und während des Betriebes eine nasse Dichtung entlang des ganzen Umfanges des Stapels bildet.

Die Elektrolyte und die Separatorplatten weisen eine Anzahl Oeffnungen an gewissen Stellen auf, wobei jede Oeffnung in der Separatorplatte mit einem Gebilde versehen ist, welches einen

flächenmässigen Kontakt auf beiden Seiten des Elektrolyts gewährleistet und beim Betrieb eine nasse Dichtung durch den Zellenstapel hindurch bildet. Oeffnungen im durchgehenden Kanal mit nassen Dichtungen für die Brennstoffzufuhr bilden Durchlässe zu den Anodenkammern auf einer Seite der Separatorplatte und Oeffnungen im durchgehenden Kanal mit nassen Dichtungen für die Sauerstoffzufuhr bilden Verbindungen zu den Kathodenkammern auf der anderen Seite der Separatorplatten. Diese Anordnung erlaubt eine vollständig im Innern geführte Zufuhr Brennstoff- und Sauerstoffgasen zu und Abfuhr aus jeder Zelle des Brennstoffzellenstapels.

Die Endplatten haben dieselbe Form wie die Separatorplatten im Innern und sind mit Mitteln für die Zufuhr und Abfuhr der Abgase sämtlicher Zellen des Brennstoffzellenstapels versehen. Die aussen an den Endplatten anschliessenden Mittel für die Zufuhr von Brennstoff- und Sauerstoffgas sowie Abfuhr der Abgase sind bekannter Art. Wenn hier von einem "Satz von Kanälen" die Rede ist, ist damit ein erster Satz für die Brennstoffzufuhr, ein zweiter Satz für den Auslass des verbrauchten Brennstoffes, ein dritter die Sauerstoffzufuhr und ein vierter Satz für den verbrauchten Sauerstoff gemeint. Die Oeffnungen in der Separatorplatte und dem Elektrolyt, welche die durchgehenden Kanäle bilden, können rund, quadratisch, viereckig, dreieckig oder jede gewünschte Form und Grösse aufweisen. Die Oeffnungen können entweder

volle Durchgänge sein oder Stauscheiben aufweisen, um damit eine gewünschte Verteilung der Gase zu erreichen. gewünschte Anzahl von Kanälen, welche die Separatorplatten und Elektrolyte durchsetzen, die nötig ist, damit um erforderliche Gasströmungsmenge und das Strömungsmuster entlang dem wirksamen Bereich der Zelle zu erreichen, lässt sich anbringen. Wichtig ist es, dafür zu sorgen, dass qute nasse Dichtungen zwischen der Separatorplatte und Elektrolyt rund um jeden Kanal vorhanden sind, wozu diese mindestens 0,63 cm breit sein sollten. Erfindungsgemäss ist auch eine nasse Dichtung zwischen den Separatorplatten und dem vollen Elektrolyt entlang dem Umfang der im Innern verlaufenden Kanäle angebracht.

Bei einer bevorzugten Ausführungsform nach der Erfindung bestehen die Separatorplatten aus dünnem Blech, sind wirksamen Bereich der Zelle mit Wellen versehen und weisen an einer Seite entlang ihres Umfanges Ausbuchtungen auf, die mit Gebilde zusammengeschweisst sind. welches beidseitige nasse Abdichtung zwischen der Separatorplatte und dem Elektrolyt entlang dem ganzen Umfang derselben ermöglicht. Gebilde, welches die nasse Dichtung zwischen Separatorplatte und dem Elektrolyt gewährleistet, jegliche Form aufweisen, wie eine Stabform oder die Form eines aus Sintermetall geformten Streifens.

Bei einer bevorzugten Ausführungsform sind die Kanalöffnungen, welche die verbreiterten nassen Dichtungen durchsetzen und eine Gaszufuhr zu den Anoden- und Kathodenkammern gewährleisten, Oeffnungen, die im gewellten Metall oder im Blech angebracht sind oder Oeffnungen, welche Stabmaterial durchsetzen.

Die Erfindung schafft einfache nasse Dichtungen zwischen flachen Blechgebilden und dem Elektrolyt und sichert eine gute Dichtung zwischen benachbarten Kanälen. Das sichert eine gute Gaszufuhr durch die im Innern verlegten Kanäle und eine gute Abfuhr der heissen Abgase aus den Brennstoffzellen, wie zum Beispiel bei einem Brennstoffzellenstapel mit geschmolzenem Karbonat. Dieser erfindungsgemässe Aufbau erlaubt die Herstellung von verschiedenartigen Zellenstapeln mit vielen Zellen.

Die Erfindung erlaubt eine Massenproduktion der Zellenkomponenten, insbesondere der Separatorplatten und deren kostengünstige Herstellung.

Die Zelleneinheiten für geschmolzenes Karbonat nach der Erfindung ermöglichen einen einfachen Zusammenbau eines Brennstoffzellenstapels und ermöglichen ebenfalls eine Anpassung an unterschiedliche Grössen.

Die Erfindung ermöglicht die Stromproduktion mit einem Brennstoffzellenstapel mit vollständig im Innern geführten Kanälen und Zellen mit geschmolzenem Alkalimetall.

In der beigefügten Zeichnung sind einige Ausführungsbeispiele der Erfindung dargestellt und an Hand davon detailliert beschrieben. Die Zeichnung zeigt in:

- Figur 1 einen aufgegliederten schematischen Schnitt einer einzigen Zelle entlang einer Diagonale, woraus das Erfindungsprinzip ersichtlich ist;
- Figur 2 eine aufgegliederte perspektivische Ansicht einer einzigen Zelle eines Brennstoffzellenstapels gemäss einer Ausführungsform der Erfindung;
- Figur 3 die Seitenansicht eines äusseren Teiles einer Brennstoffzelle im Bereich der nassen Abdichtung gemäss einer erfindungsgemässen Ausführung;
- Figur 4 einen Schnitt einer einzigen Zelle, in welchem die Oeffnung des Brennstoff-Zufuhrkanals in das Anodenabteil ersichtlich ist;
- Figur 5 einen Schnitt der Zelle nach Figur 4, in welchem die

 Oeffnung des Oxydationsmittel-Zufuhrkanals in das

 Kathodenabteil ersichtlich ist;

Figur 6 die Vorderansicht einer anderen Ausführung einer Platte mit Zufuhrkanälen eines Brennstoffzellenstapels nach der Erfindung;

Figur 7 die Rückseite der Platte nach Figur 6;

Figur 8 einen Schnitt längs der Linie 8-8 in Figur 6 in grösserem Massstab;

Figur 9 einen Schnitt längs der Linie 9-9 in Figur 6 in grösserem Massstab

und

Figur 10 einen Schnitt längs der Linie 10-10 in Figur 6 in grösserem Massstab.

Die Erfindung bezieht sich auf Brennstoffzellenstapel mit in Inneren geführten Zufuhrkanälen. Bei den bevorzugten Ausführungsformen wird die Elektrolytkachel von den Zufuhrkanälen durchsetzt und in gewissen Bereichen von der Separatorplatte berührt. Die Berührungsfläche Elektrolyt/-Separatorplatte bildet eine nasse Abdichtung für die im Brennstoffzellenstapel enthaltenen Fluide und eine isolierende Abdichtung für die wirksamen Teile. Sie sorgt zudem für die

Führung der Fluide zu und aus den Abteilen der einzelnen Brennstoffzellen mit geschmolzenem Karbonat.

Vorzugsweise werden dünne aus Blech hergestellte Separatorplatten mit angeformten, auf einer Seite vorstehenden Rändern verwendet, welche an der Gegenseite mit Formteilen versehen sind und die Dichtungsflächen bilden. Die dünnen Bleche weisen eine beschränkte Biegsamkeit und Flexibilität auf und gestatten eine ausreichende Abdichtung.

Figur 1 zeigt einen aufgegliederten diagonalen Querschnitt einer einzigen Zelle von einer Ecke zur anderen Ecke und zeigt den Durchfluss des Brennstoffes und des oxidierenden Gases innerhalb der Zelle.

Bei dieser Anordnung sind die Oeffnungen der Kanäle in den Ecken des Elektrolyts angeordnet und erstrecken sich auch auf die Zellentrannplatten. Der Kontakt zwischen dem Elektrolyt und den auf beiden Seiten Aufliegenden Separatorplatten bildet die bekannte nasse Abdichtung am Umfang des Elektrolyts und dichtet die Fluide ab. Durch Oeffnungen besteht eine Verbindung zwischen den Kanälen und den Anodeund Kathodeabteilen und dies erlaubt die erwünschte Gasströmung, wobei die Kanalöffnungen durch die bekannte Elektrolyt/Separatorplatten Abdichtung nass abgedichtet sind.

aufeinander anschliessenden Die Kanalöffnungen in SEparatorplatten und den Elektrolytkacheln bilden Kanäle für die Zufuhr und die Ableitung der Gase, die sich über die ganze Länge des Brennstoffzellenstapels erstrecken. Die Erfindung schafft auf diese Weise einen Kanal, der sämtliche Zellen eines Brennstoffzellenstapels erreicht und nur eine einzige, nach aussen führende Oeffnung hat, während bisher bekannte Brennstoffzellenstapel für jede einzelne Zelle eine eigene, nach ausser geführte Oeffnung benötigten. Die Gase werden dem Zellenstapel durch eine Endplatte zugeführt, die eine halbe Zelle bildet und durch eine ähnliche Platte, die eine halbe Zelle bildet, abgeführt. Die Art und Weise, wie die Gase dem Zellenstapel zugeführt und von ihm weggeführt werden, kann auf viele unterschiedliche Arten geschehen. Das wesentliche der Erfindung besteht darin, dass die Gasabdichtung über bekannte nasse Abdichtungen sowohl zwischen der Elektrolytkachel und dem Umfang der Separatorplatte als auch im Bereich der Gaskanäle stattfindet.

In Figur 1 stellt 20 eine Elektrolytkachel und 40 eine Separatorplatte dar, die sich bis zur äusseren Ecke der Zelle erstreckt, wobei diese entlang ihres Umfanges durch nasse Abdichtbereiche 23 abgedichtet sind. Figur 1 zeigt eine einzige, mit geschmolzenem Karbonat arbeitende Brennstoffzelle mit einer Anode 26, die im Abstand von einer Seite der Separatorplatte 40 angeordnet ist und auf diese Weise eine Anodenkammer bildet, in welche Brennstoff aus der Kanalöffnung

24 einströmt wie Pfeil 38 andeutet. Auf der anderen Seite der Separatorplatte 40, aber im Abstand von dieser, befindet sich die Kathode 27 und bildet eine Kathodenkammer, die Verbindung mit der Sauerstoff-Kanalöffnung 25 steht wie Pfeil 39 andeutet. Elektrolyt und Separatorplatte 40 erstrecken sich äusseren Rand der Zelle und bilden bis zum nasse zwischen dem Elektrolyt und Dichungsgebiete 23 der Separatorplatte. Die Brennstoffzufuhrkanäle sind durch das nasse Dichtungsgebiet 45 und die Sauerstoffzufuhrkanäle durch das nasse Abdichtungsgebiet 46 jeweils durch die nasse Dichtung zwischen der Elektrolyt- und der Separatorplatte nach aussen abgedichtet und führen zu den an entgegengesetzten Seiten der Separatorplatte 40 angeordneten Anoden-Kathodenkammern. Es werden keine zusätzlichen Dichtungen zum Abdichten erforderlich, und die Zelle verträgt unterschiedliche Karbonatzusätze sowie die Anwendung Karbonatbändern. Werden Karbonatbänder angewendet, erstrecken sich diese zusammen mit der Elektrolytmatrix bis in die Zellenenden. Obwohl sich die Abstände zwischen den Zellen infolge der Dicke der Karbonatbänder verringern wenn diese schmelzen, bleibt die Abdichtung immer erhalten.

Während des Aufheizens der Zellen, bevor die Karbonatbändere schmelzen, bleibt die Abdichtung am Umfang der Kanalöffnungen 24 und 25 erhalten, da die Karbonatbänder wie auch die Elektrolytmatrix aus zum Beispiel LiAlO₂ sich bis zu den Dichtungsflächen erstrecken und ein gummiartiges Bindemittel

enthalten. Während das Bindemittel verbrennt, was geschieht, wird der Karbonat schmilzt, Gasstrom bevor das aufrechterhalten und die Abdichtung bleibt erhalten. Ist das Bindemittel verbrannt und steigt die Temperatur bis Schmelzpunkt des Karbonats, wird das geschmnolzene Karbonat vom porösen LiAlO2, dem Band und den Elektroden absorbiert. Beim Schmelzen der Karbonatbänder wird der Raum in den Zellen aber verkleinert, bei allen Temperaturstufen von Raumtemperatur bis etwas 650 °C bleibt die Abdichtung der Zellen erhalten. Die beschränkte Biegsamkeit und Elastizität der dünnen Metallbleche in den Abdichtbereichen sorgt dafür, dass die Abdichtung der Zellen erhalten bleibt.

Figur 2 zeigt eine aufgegliederte perspektivische Ansicht einer Brennstoffzelle eines Zellenstapels nach der Erfindung für geschmolzenes Karbonat mit Separatorplatten 40, Kathode 27, Kathodenkollektor 28, Elektrolyt 20, Anode 26 Beide Separatorplatten Anodenstromkollektor 29. 40 und Elektrolyt 20 erstrecken sich bis zum Rand der Zelle und beiden Abdichtungen Seiten bilden nasse an der Separatorplatten 40 entlang des ganzen Umfanges 43 der Zelle. Die am Umfang liegenden nassen Abdichtungen 43 erstrecken sich nach oben und unten in Bezug auf die Ebene der Separatorplatte 40 und bilden daher den Kontakt mit dem Umfang des Elektrolyts an beiden Seiten der Separatorplatte 40. Sowohl die Separatorplatten 40 wie auch die Elektrolytkacheln 20 weisen durchgehende Kanalöffnungen 24 für den Brennstoff

Kanalöffnungen 25 für den Sauerstoff auf. Bei der Ausführung nach Figur 2 weisen sowohl die Separatorplatten 40, wie auch die Elektrolytkacheln 20 nur in den Ecken Kanalöffnungen auf, um so die grösste Distanz zwischen den Kanälen zu schaffen. Wie Figur 2 zeigt, sind vorzugsweise Oeffnungen in sämtlichen der Separatorplatten 40 und Elektrolytkacheln angebracht. Die in Figur 2 dargestellten Oeffnungen haben eine Dreieckform und weisen gerade nassdichtungsgebiete auf. Die Oeffnungen können aber auch eine runde, rechteckige oder andere Form aufweisen. Die in Figur 2 dargestellten Oeffnungen sind voll offen; es ist aber auch möglich, Wände in den Oeffnungen anzubringen, um damit den Gasstrom durch die Zellen zu leiten. Die nassen Abdichtgebiete 45 und 46 erstrecken sich sowohl nach oben wie nach unten bezüglich der Ebene der Separatorplatte 40 und bilden so Berührungsflächen auf beiden Seiten eines benachbarten Elektrolyts 20, welche die Gaskanäle bilden. Die Fläche der Anode 26 ist ungefähr bündig mit der äusseren nassen Abdichtung 43 am Umfang und der nassen Kanalabdichtung 46 und bildet eine Abdichtung zwischen der Separatorplatte 40 und dem Elektrolyt 20. Auf der anderen Seite der Separatorplatte 40 befindet sich die Kathode, deren Oberfläche etwa bündig mit der Ebene der nassen Abdichtung 43 verläuft und bildet mit dieser eine nasse Abdichtung 45 zwischen der Separatorplatte 40 und dem Elektrolyt 20 in diesem Bereich.

In Figur 2 sind die Kanalöffnungen 25 ersichtlich mit den nassen Abdichtungen 46, welche die Oeffnung 48 Sauerstoffzufuhr ausschliesslich zu den Kathodenkammern freigeben (angrenzend an die obere Seite der Separatorplatte) und verhindern, dass einströmendes Sauerstoffgas in oder aus der Anodenkammer strömt. Die Kanalöffnungen 24 weisen nasse Dichtungen 45 auf, die eine ausschliessliche Brennstoffzufuhr durch die Oeffnungen 47 zur Anodenkammer freigeben (angrenzend an die untere Seite der Separatorplatte) und verhindern, dass einströmender Brennstoff in die Kathodenkammer gelangt. Die Kanalabdichtungen mittels nassen Dichtungen sind als gerade Blechteile dargestellt; sie können aber jede gewünschte Form oder Aufbau aufweisen, der geeignet ist, den Gasaustritt zu verhindern. Die Kanalabdichtungen bilden eine doppelte Dichtung zwischen den Brennstoffzufuhrkanälen 24 und den Sauerstoffzufuhrkanälen 25.

Die Separatorplatten 40 sind geeignetem aus Material hergestellt, welches ausreichende mechanische Festigkeit aufweist und gasdicht ist. Bei vielen Zellenstapeln werden vorzugsweise bimetallische Separatorplatten verwendet, bei denen sich rostfreier Stahl an der Kathodenseite und Nickel oder Kupfer an der Anodenseite befindet, um damit Eisenrost zu verhindern. Die Separatorplatten können auch Stahllegierungen bestehen, wie zum Beispiel rostfreiem Stahl Typ 300. Die Separatorplatten erfüllen eine doppelte Aufgabe, indem sie nicht an der Reaktion teilnehmende Trennwände bilden

und der Zelle eine strukturelle Festigkeit geben, welche Kräfte aufnehmen kann. Obwohl es aus Festigkeitsgründen und zwecks besserer Gaszirkulation in der Nähe der Elektroden vorzuziehen ist, gewellte Separatorplatten zu verwenden. lassen sich bei der erfindungsgemässen Ausführung auch flache Separatorplatten verwenden, welche eine nasse Abdichtung am Umfang und um die Gaszufuhröffnung gewährleisten. Die Separatorplatten eines Zellenstapels sind vorzugsweise sehr dünne Bleche von etwa 0,025 cm Dicke. Die Verwendung solcher dünner gestanzter Bleche aus rostfreiem Stahl bei Wärmeaustauschern ist beispielsweise bekannt geworden "Modern Design For Effective Heat Transfer", American Heat Reclaiming Corp., 1270 Avenue of the Americas, New York 10020 und "Supercharger Plate and Frame Heat Exchanger", Tranter Inc., Wichita Falls, Texas 76307. Bei diesen Wärmeaustauschern werden aussen abgedichtete, geprägte Metallplatten zwischen Endrahmen gepresst, so dass sich zwischen den Platten Kanäle bilden, durch welche auf der einen Seite des Bleches das heisse Medium und auf der anderen Seite das kalte Medium strömt.

Bei Separatorplatten für einen Brennstoffzellenstapel bestehen allerdings qanz andere Voraussetzungen bezüglich der Abdichtung und Korrosion durch das qeschomolzene Alkalimetall-Karbonat beim Betrieb der Brennstoffzellen, wobei zwei Fluide den Zellen getrennt durch die Separatorplatten zugeführt werden müssen. Beim Wärmeaustauscher strömt nur ein

Fluid zwischen zwei benachbarten Platten hindurch. Trotzdem können für die Strömung entlang den Elektroden Brennstoffzellenstapels nach der Erfindung bekannte Techniken Muster der Wärmeaustauscher verwendet werden, Fischgratmuster, Waschbrettmuster, gerade Wellen und gemischte Muster.

Figur 3 zeigt eine nasse Umfangsdichtung einer erfindungsgemässen Ausführungsform im Detail. Die dünne Separatorplatte 40 ist gewellt, wobei die Wellenköpfe auf einer Seite nahe der Stützplatte 28 der Kathode 27 liegen und die Stützplatte mit Perforationen 29 versehen ist. Separatorplatte 40 weist an der Kathodenseite bei 44 einen Dichtungsbereich auf, wo sie auf der benachbarten Elektrolytplatte 20 auflieqt. Der aus dünnem Blech hergestellte Abdeckstreifen 41 für die nasse Abdichtung ist mittels Schweissnähten 42 oder auf andere Weise mit der Anodenseite der Separatorplatte 40 verbunden und bildet den nassen Abdichtungsbereich 43, der auf der Anodenseite der Zelle auf dem Elektrolyt 20 aufliegt. Es dürfte klar sein, dass die Lage der Separatorplatte und des Abdeckstreifens umgekehrt sein kann, und dass die Abdichtbereiche 43 und 44 den Zwischenabständen der Zellen anpassbar sind.

Figur 4 zeigt einen Schnitt durch den Brennstoffkanal 24 und die Anodenkammer, wobei der Bereich der nassen Abdichtung 45 des Brennstoffkanals zwischen der unteren Seite der Separatorplatte 40 und dem Elektrolyt 20 liegt. Einerseits verhindert dies, dass Brennstoff zur Kathodenkammer strömt und andererseits wird dafür gesorgt, dass Brennstoff in die Anodenkammer in den Raum zwischen die Anode 26 und der oberen Seite der Separatorplatte 40 strömt.

Auf gleiche Weise zeigt Figur 5 einen Schnitt durch den Sauerstoffzufuhrkanal 25 und die Kathodenkammer, wobei der Bereich der nassen Abdichtung 44 zwischen der oberen Seite der Separatorplatte 40 und dem Elektrolyt 20 liegt. Einerseits verhindert dies, dass Sauerstoff zur Anodenkammer strömt und andererseits wird dafür gesorgt, dass Sauerstoff in die Kathodenkammer in den Raum zwischen der Kathode 27 und der Unterseite der Separatorplatte 40 strömt. Die Durchlässe für Brennstoff und Sauerstoff können durch in der Separatorplatte angebrachte Wellen oder durch Oeffnungen in einem auf der Separatorplatte befestigten Blechstreifen oder durch andere das Gas verteilende Mittel geschaffen werden.

Figuren 6-10 zeigen eine andere erfindungsgemässe Ausführungsform der Separatorplatte. Bei dieser Ausführungsform sind die Zufuhrkanäle für Brennstoff und Sauerstoff wechselweise an gegenüberliegenden Enden der dünnen Separatorplatte angebracht. Die Kanäle für verbrauchten Sauerstoff und Brennstoff sind wechselweise im mittleren Bereich der Separatorplatten angebracht, getrennte was Gasströme ermöglicht und zugleich den dünnen Separatorplatten mit grösserer Fläche grössere Stabilität verleiht. Die dünnen metallischen Separatorplatten sind auf gleiche Weise geformt wie oben beschrieben mit eingepressten Wellen im wirksamen Teil, um damit Anodenkammern und Kathodenkammern für das Gas zu schaffen. Sie weisen äussere Randgebiete mit Abdichtblechstreifen für die nasse Abdichtung auf.

Figur zeigt die Oberoder Vorderansicht einer Separatorplatte, Figur 7 die Unter- oder Rückansicht derselben Platte. Die elektrochemisch wirksamen Flächen der Separatorplatte 140 sind gewellt, wie aus Figur 9 ersichtlich ist und weisen nassdichtungsgebiete 123 auf, die über das gewellte Gebiet hinausragen für den Flächenkontakt mit einem Elektrolyt einer Zelle und einem Dichtungsblechstreifen 141 an der anderen Seite der Separatorplatte 140 für Flächenkontakt mit dem Elektrolyt einer benachbarten Zelle. Wechselweise sind Kanalöffnungen 125 für den Sauerstoff und Kanalöffnungen 124 für den Brennstoff entlang entgegengesetzten Endgebieten und im mittleren Bereich sind wechselweise Kanalöffnungen 125 A für Sauerstoff Kanalöffnungen 124 A für Brennstoff in der Separatorplatte 140 angebracht. Die Reihe von Sauerstoff und Brennstoffkanalöffnungen an den einander gegenüberliegenden Enden der Separatorplatte 140 dienen der Gaszufuhr, die im mittleren Teil angebrachten Oeffnungen dienen der Wegleitung.

Figur 8 zeigt, wie Sauerstoff durch die Kanalöffnungen 125 eintritt und durch Oeffnungen 148 in den wirksamen Teil der Separatorplatte gelangt, wie die Pfeile in Figur 6 dies andeuten. Der Sauerstoff durchströmt die Kanäle der gewellten Separatorplatte 140, welche die Kathodengaskammer bilden bis zu den Sauerstoffauslassöffnungen 158, wie die Pfeile in Figur 6 andeuten, wobei der Sauerstoff durch die Kanalöffnungen 125 A einströmt. Auf gleiche Weise strömt Brennstoff durch die Kanalöffnungen 124 in die Zufuhröffnungen 147 und strömt durch die von der gewellten Separatorplatte gebildeten Kanäle, welche die Anodengaskammer bilden. zu den Brennstoffauslassöffnungen 157, wie dies die Pfeile in Figur 7 andeuten, zu den Kanalöffnungen 124 A.

Die Figuren 6 und 7 zeigen eine gleichgerichtete Strömung an gegenüberliegenden Seiten der Separatorplatte, wobei die Brennstoff- und Sauerstoffgase an einander gegenüberliegenden zugeführt und durch im mittleren Bereich der Separatorplatte angebrachte Kanäle abgeführt werden. derselben Separatorplatte lässt sich eine entgegengesetzte Strömung von Brennstoff- und Sauerstoffgasen an einander gegenüberliegenden Seiten der Platte erzielen, wenn man ein durch die zentralen Kanäle zuführt und durch die aussenliegenden Kanäle an beiden Enden abführt, während man das andere Gas durch die aussenliegenden Kanäle zuführt und durch die zentralen Kanäle abführt. Damit ist gezeigt, wie verschiedene Gasströmungsbilder an entgegengesetzten Seiten

der Separatorplatte mit ein und derselben Platte erreichbar sind, wozu nur die äusseren Anschlüsse an die Kanäle der Zelle geändert werden müssen.

hat sich gezeigt, dass durch Verwendung von Metallblechen bei sämtlichen nassen Abdichtungen Separatorplatte infolge der beschränkten Flexibilität und Biegsamkeit im nassdichtungsbereich bei einem Brennstoffzellenstapel die Gasleckage auf ein Minimum beschränkt oder gar vollkommen verhindert werden kann, wenn die nassen Dichtungen zwischen benachbarten Brennstoff- und Sauerstoffkanälen mindestens mm breit sind. Die Separatorplatten aus dünnem Blech nach der Erfindung haben eine ausreichende Festigkeit und lassen sich herstellen. Die aufgetrennte Strömung zwischen den Separatorplatten nach den Figuren 6-10 ergibt eine zusätzliche Steifigkeit durch die Abstützung der Platte bei den nassen Dichtungen rund um die Kanäle im mittleren Bereich der Platte. Ausführungsform erlaubt auch die Verwendung Elektroden, die nur einen Teil, in diesem Fall die Hälfte, der stromproduzierenden Fläche der Brennstoffzelle ausmachen, was Herstellung erleichtert und eine Herstellung mit Bandschmelzen und Sintern bei kleinen Einheiten ermöglicht.

Ein wesentliches Merkmal der Erfindung stellen die aus dünnem Blech hergestellten, vorstehenden nassdichtungsbereiche der Separatorplatten dar, die ein direktes Aufliegen auf dem

Elektrolyt einer Zelle und auf der gegenüberliegenden Seite auf dem Elektrolyt einer benachbarten Zelle ermöglichen, wobei die Kanäle für den Brennstoff und den Sauerstoff nur die Separatorplatten und das Elektrolyt durchsetzen. Durch die Verwendung von nassen Dichtungen zwischen der Separatorplatte Elektrolyt lässt sich und dem erreichen. dass der Brennstoffzufuhrkanal direkt mit der Anodenseite der Separatorplatte und der Sauerstoffzufuhrkanal direkt mit der Kathodenseite der Separatorplatte in Verbindung steht, ohne dass dazu poröse Dichtungen erforderlich sind wie bei aussen angeordneten Kanälen. Ausserdem können sämtliche Gaskanaldichtungen mit Aluminium beschichtet sein, um damit einer Korrosion und Undichtigkeit vorzubeugen.

Bei den im Innern angeordneten Kanälen nach der Erfindung wird das Schmelzen des Karbonatbandes im Herstellungswerk ausgeführt und nachdem dies ausgeführt worden ist, treten keine Aenderungen mehr in den Zellenabständen auf. Die Höhe des Zellenstapels, wie er vom Hersteller angeliefert wird, bleibt beim Betrieb in einem Druckkessel unverändert. Die einzige Unterhaltsmassnahme ist die, dass dafür gesorgt werden muss, dass die Zellen bei den Dichtungsstellen unter Druck bleiben.

<u>Patentansprüche</u>

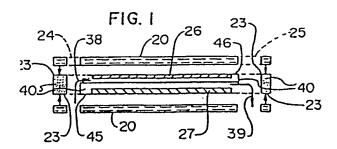
Ein annähernd rechteckiger Brennstoffzellenstapel, eine Vielzahl von einzelnen Brennstoffzellen enthält, von denen jede eine Anode (26) und eine Kathode (27) enthält und einen Elektrolyten (20), der auf einer Seite der Anode (26) aufliegt und einen Elektrolyten, der auf einer gegenüberliegenden Seite der Kathode (27) aufliegt und eine Separatorplatte (40), welche zwischen der Anode (26) und der Kathode (27) liegt, eine Anodenkammer auf einer Seite der Separatorplatte (40) bildet, während die andere Seite der Separatorplatte (40) eine Kathodenkammer bildet, wobei die Anodenkammer mit einer Brennstoffgaszufuhr und einem Auslass in Verbindung steht, während die Kathodenkammer mit einer Sauerstoffgaszufuhr und einem Auslass in Verbindung steht und wobei sich sowohl der Elektrolyt (20) und die Separatorplatten (40) bis an den erstrecken, äusseren Rand des Brennstoffzellenstapels wobei die Separatorplatten periphere Dichtungsgebilde aufweisen, die unter Betriebsbedingungen flächenmässige Dichtungen (43)zwischen nasse Elektrolyt (20) und der Separatorplatte (40) bilden, wobei sich die Dichtungen entlang dem ganzen Umfang der Zelle erstrecken und wobei die Elektrolyte (20) Separatorplatten (40) je eine Anzahl Durchlassöffnungen

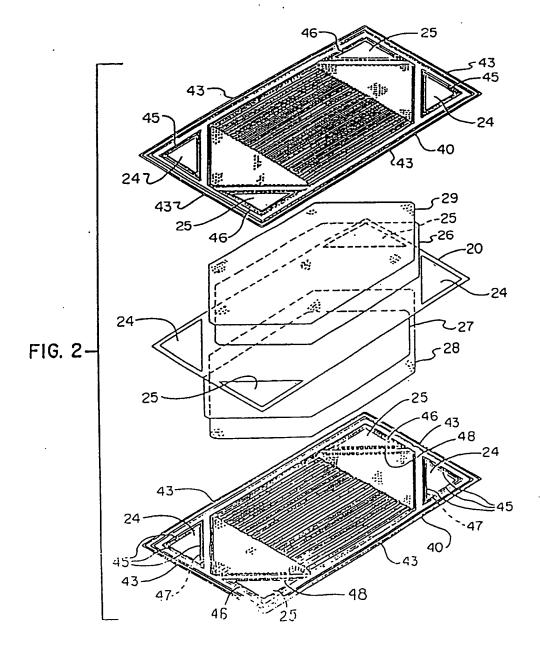
(24,25) aufweisen, wobei die Durchlassöffnungen (24,25) in Separatorplatten (40) von flächenmässigen nassen Dichtungsbereichen (45,46) umgeben sind, die auf jeder Seite der Separatorplatte (40) am Elektrolyten (20) anliegen, so dass sie im Betrieb eine Dichtung zwischen Separatorplatte und Elektrolyt und durch den Zellenstapel hindurchführende Gaskanäle bilden, wobei die durch die erweiterten nassen Dichtungsbereiche (45) hindurchführenden Kanäle eine Brennstoffgaszufuhr den Anodenkammern auf einer Seite der Separatorplatten (40) bilden und die erweiterten nassen Dichtungsbereiche (46) eine Sauerstoffgaszufuhr des anderen Satzes von Kanälen auf der anderen Seite der Separatorplatten (40) Sauerstoffgaszufuhr zu den Kathodenkammern ermöglichen, so dass sie vollständig im Innern des Zellenstapels geführte Zu- und Abführkanäle von Brennstoff- und Sauerstoffgas zu jeder einzelnen Zelle des Stapels bilden, dadurch gekennzeichnet, dass

die Durchlassöffnungen (24,25) in den Separatorplatten (40) und in den Elektrolyten (20) aufeinander ausgerichtet sind und dass die flächenmässigen peripheren nassen Dichtungsgebilde (43) an einer Seite der Separatorplatte (40) eine aus der Platte gepresste Form (44) aufweisen und dass auf der anderen Seite der Separatorplatte ein gepresster Metallstreifen (41) befestigt ist, welcher die periphere nasse Dichtung (43) auf der anderen Seite der Separatorplatte (40) bildet.

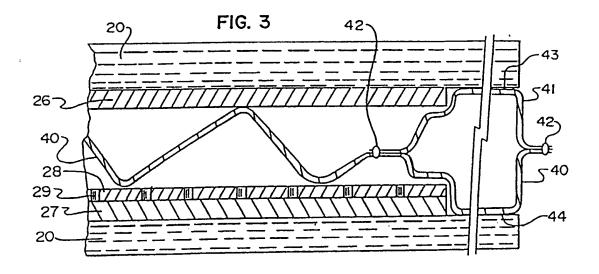
- 2. Brennstoffzellenstapel nach Patentanspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass dessen Endplatten dieselbe Form wie die im Innern des Stapels angeordneten Separatorplatten (40) aufweisen und halbe Zellen bilden.
- 3. Brennstoffzellenstapel nach Patentanspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass die Separatorplatten (40) aus Metall gepresste Platten sind.
- 4. Brennstoffzellenstapel nach Patentanspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass die Gebilde (45,46), welche die nassen Dichtungen der durchgehenden Kanäle bilden, an einer Seite der Separatorplatte (40) aus einer Pressform derselben bestehen, welche die erweiterte nasse Dichtung auf der einen Seite bildet und auf der anderen Seite der Separatorplatte aus einem mit der Separatorplatte (40) verbundenen, gepressten Metallstreifen besteht, welcher die erweiterte nasse Dichtung auf der anderen Seite der Separatorplatte (40) bildet.
- 5. Brennstoffzellenstapel nach Patentanspruch 1 oder 4, dadurch gekennzeichnet, dass die Leitungskanäle durch die erweiterten nassen Dichtungsbereiche aus gewelltem Metallblech geformt sind.

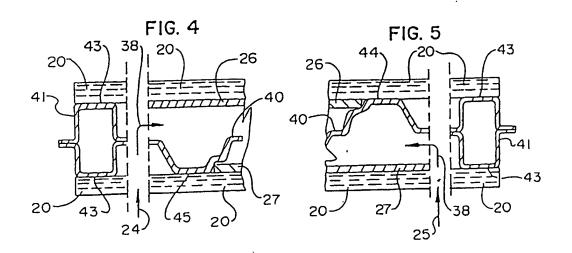
- 6. Brennstoffzellenstapel nach Patentanspruch 1 oder 4, dadurch gekennzeichnet, dass die Leitungskanäle durch die erweiterten nassen Dichtungsbereiche aus Oeffnungen in den Gebilden aus Blech bestehen.
- 7. Brennstoffzellenstapel nach Patentanspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass die Durchlassöffnungen (24,25) in jeder Ecke sowohl in den Elektrolyten und in den Separatorplatten (40) angebracht sind.
- 8. Brennstoffzellenstapel nach Patentanspruch 7, dadurch gekennzeichnet, dass die Durchlassöffnungen (24,25) eine Dreieckform aufweisen, von welcher zwei Seiten parallel zur Aussenform des Zellenstapels verlaufen.
- 9. Brennstoffzellenstapel nach Patentanspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass das Elektrolyt (20)
 Alkalimetall-Karbonate enthält.

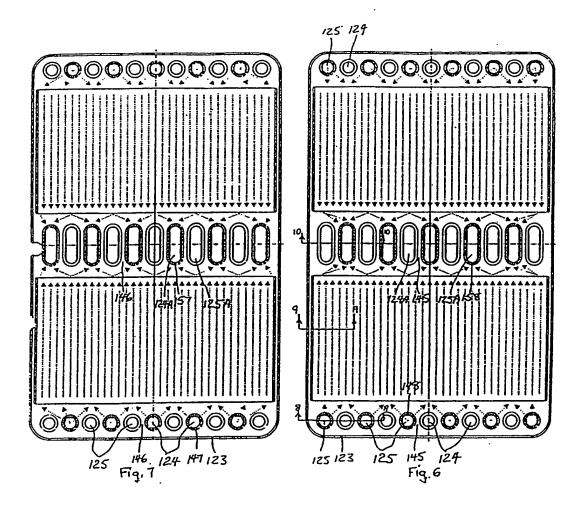




2/3







-:4